

Rec'd PCT/PTO 27 SEP 2004

PCT/JP 03/04039

日 本 国 特 許 庁
JAPAN PATENT OFFICE

28.03.03

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office

出 願 年 月 日

Date of Application:

2003年 2月26日

出 願 番 号

Application Number:

特願2003-049638

[ST.10/C]:

[JP 2003-049638]

出 願 人

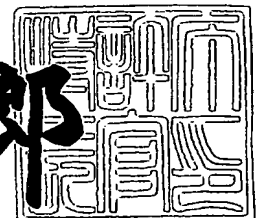
Applicant(s):

新日本製鐵株式会社

2003年 6月 2日

特 許 庁 長 官
Commissioner,
Japan Patent Office

太田信一郎



出証番号 出証特2003-3042152

【書類名】 特許願

【整理番号】 1033334

【提出日】 平成15年 2月26日

【あて先】 特許庁長官 太田 信一郎 殿

【国際特許分類】 C22C 38/02

【発明者】

 【住所又は居所】 千葉県富津市新富 2 0 - 1 新日本製鐵株式会社 技術
開発本部内

 【氏名】 中村 修一

【発明者】

 【住所又は居所】 千葉県富津市新富 2 0 - 1 新日本製鐵株式会社 技術
開発本部内

 【氏名】 本間 穂高

【特許出願人】

 【識別番号】 000006655

 【氏名又は名称】 新日本製鐵株式会社

【代理人】

 【識別番号】 100077517

 【弁理士】

 【氏名又は名称】 石田 敬

 【電話番号】 03-5470-1900

【選任した代理人】

 【識別番号】 100092624

 【弁理士】

 【氏名又は名称】 鶴田 準一

【選任した代理人】

 【識別番号】 100113918

 【弁理士】

 【氏名又は名称】 亀松 宏

【選任した代理人】

【識別番号】 100082898

【弁理士】

【氏名又は名称】 西山 雅也

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 036135

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【包括委任状番号】 0018106

【ブルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 皮膜密着性の極めて優れた方向性電磁鋼板の製造方法

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 質量%で、Si : 2%~4.5%、Ti : 0.1%~0.4%、C : 0.025%以上、Cu : 0.03%以上0.4%以下を含有し、残部実質的にFeおよび不可避的不純物からなる鋼を溶製し、鑄造し、熱延し、冷延し、引き続き高温焼鈍を施すことを特徴とする皮膜密着性の極めて優れた方向性電磁鋼板の製造方法。

【請求項 2】 質量%で、Si : 2%~4.5%、Ti : 0.1%~0.4%、C : $(0.251 \times [\text{Ti}] + 0.005)$ %以上、Cu : 0.03%以上0.4%以下を含有し、残部実質的にFeおよび不可避的不純物からなる鋼を溶製し、鑄造し、熱延し、冷延し、引き続き高温焼鈍を施すことを特徴とする皮膜密着性の極めて優れた方向性電磁鋼板の製造方法。

【請求項 3】 冷間圧延の複数パスのパス間に100℃~500℃の温度域で1分以上保持する熱処理を少なくとも1回施し、引き続き高温焼鈍を施すことを特徴とする請求項 1 または 2 に記載の皮膜密着性の極めて優れた方向性電磁鋼板の製造方法。

【請求項 4】 冷間圧延を1パス目の出側以降100℃~500℃の温度域で行い、引き続き高温焼鈍を施すことを特徴とする請求項 1 または 2 に記載の皮膜密着性の極めて優れた方向性電磁鋼板の製造方法。

【請求項 5】 前記高温焼鈍を施した後、引き続き700℃以上の温度で平坦化焼鈍を行い、更に絶縁コーティングの塗布、焼き付けを行うことを特徴とする請求項 1 ~ 4 のいずれかの項に記載の皮膜密着性の極めて優れた方向性電磁鋼板の製造方法。

【請求項 6】 熱延板に700~1200℃の温度域で30秒~30分間の焼鈍を施すことを特徴とする請求項 1 ~ 5 のいずれかの項に記載の皮膜密着性の極めて優れた方向性電磁鋼板の製造方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、密着性の極めて良好な皮膜を有する磁気特性に優れた方向性電磁鋼板の製造方法に関する。

【0002】

【従来の技術】

方向性電磁鋼板は変圧器、回転機、リアクトル等の鉄心材料として、工業的に最も一般的に用いられる軟磁性材料であり、物理学で用いられるミラー指数で $<100>$ と表現される、最も容易に磁化される方位が圧延方向にほぼ揃えられた結晶粒から構成される鋼板である。即ち、多結晶鋼板でありながら単結晶鋼板であるかのごとく特定方向への磁化特性が優れているため鉄損（鉄心でのエネルギー損失）特性に優れた工業製品として望ましい材料である。

【0003】

方向性電磁鋼板は、一般に二次再結晶と呼ばれる現象を活用して結晶の磁化容易軸を特定方向に揃えたもので、工業技術として公に開示された例としては、特許文献1、特許文献2、特許文献3等を挙げることができる。これらの技術では、二次再結晶はSiを多く含んだ鋼に、インヒビターと通称される第二分散相としてMnS他、種々の化合物を析出させ、冷間圧延と焼鈍とを組み合わせることで二次再結晶を発現させている。

【0004】

これらの製造方法においては、冷延後、仕上焼鈍に先立って、脱炭焼鈍を行うという共通点があるが、製鋼段階で調整した炭素は二次再結晶の進行それ自体には全く不要な元素である。実際には、例えば特許文献2の方法では、MnSとAlNを適切に分散析出させるために必要な元素、即ち二次再結晶の準備のために必要な元素でしかなく、通常、二次再結晶を行う焼鈍工程前に鋼中から除去しなければならない。また、これらの方法では、熱延に先立って鋼塊またはスラブの加熱を1350℃以上という超高温で実施しなければならない。

【0005】

この問題を回避するために菅らは特許文献4に開示される方法では、スラブ加熱温度を低温化し二次再結晶に必要なインヒビターを冷延工程以後に作り込む新

たな技術を提供している。この方法であれば炭素を予め鋼中に含有させる必要性が低下し脱炭焼鈍を省略することも可能と考えられるが、冷間圧延から二次再結晶焼鈍に至るまでに鋼板外部から窒素を鋼中にドーピングする必要があり、結果としての焼鈍工程省略はできていない。このように、従来技術においては、二次再結晶の冶金原理に鑑みて元来不要な脱炭焼鈍もしくは冷延と二次再結晶焼鈍に挟まれた独立工程としての焼鈍工程を省略することが困難である。

【0006】

脱炭工程省略という課題については、特許文献5に開示された技術がある。この特許文献5に開示された方法は、旧来の方法を応用し、溶製段階で鋼中に炭素を含有させず、二次再結晶鋼板を得ることに成功している。しかし、実際には二次再結晶焼鈍に先立つ冷延後の焼鈍を完全には省略できてはいない。その理由は、方向性電磁鋼板の製品要件である皮膜を形成するために、鋼板表面に僅かな酸化層を形成させて二次再結晶焼鈍に必要な焼鈍分離剤の一部と反応させなければならず、そのためには、脱炭焼鈍と同様の湿潤雰囲気中焼鈍を導入する方が技術的に容易であったためである。また、さらに、この方法においても熱延に先立つ鋼塊あるいはスラブの加熱温度は1350℃以上の超高温でなければならず大きな負担を強いられる技術であることに変わりはない。

【0007】

【特許文献1】

米国特許第1965559号公報

【特許文献2】

特公昭33-4710号公報

【特許文献3】

特公昭38-8214号公報

【特許文献4】

特開昭59-56522号公報

【特許文献5】

特開昭55-73818号公報

【0008】

【発明が解決しようとする課題】

本発明は、スラブ加熱温度の低温化および脱炭焼鈍工程という負荷を軽減し、製造コストが安価で、密着性の極めて良好な皮膜を有する、とりわけ二次再結晶の安定性を高めた磁気特性の良好な方向性電磁鋼板の製造方法を提供するものである。

【0009】

【課題を解決するための手段】

本発明は、鋼にTi, Cを適量添加しTiC析出物をインヒビターとして作用させて、冷延板を直接仕上焼鈍に供することで方向性電磁鋼板を製造する方法を発明した。この方法によれば、二次再結晶後不要となったTiCインヒビターはやがて鋼板表面に偏析析出し皮膜様となって、方向性電磁鋼板の製品要件を満たすことができる。即ち、仕上焼鈍に先立つ鋼板表面での酸化層形成を不要とし、さらには、スラブ加熱温度は1250℃と普通鋼と同等であり、スラブ加熱温度の負担の少ない製造技術として位置づけることができる。

【0010】

本発明は、TiC析出物をインヒビターとして用いる新規の技術であるために二次再結晶発現の安定性などに関しては検討の余地があり、本発明者らは、前記方法における二次再結晶の安定性についてさらに詳細に検討した。その結果、上記鋼に、更にCuを0.03%以上0.4%以下添加することによって二次再結晶の安定性が格段に向上し、かつ磁束密度B₈も併せて向上することを知見した。

【0011】

本発明の要旨は次のとおりである。

(1) 質量%で、Si: 2%~4.5%、Ti: 0.1%~0.4%、C: 0.025%以上、Cu: 0.03%以上0.4%以下を含有し、残部実質的にFeおよび不可避免的不純物からなる鋼を溶製し、鑄造し、熱延し、冷延し、引き続き高温焼鈍を施すことを特徴とする皮膜密着性の極めて優れた方向性電磁鋼板の製造方法。

(2) 質量%で、Si: 2%~4.5%、Ti: 0.1%~0.4%、C: (0

、 $251 \times [\text{Ti}] + 0.005$) %以上、 Cu : 0.03 %以上0.4 %以下を含有し、残部実質的に Fe および不可避免の不純物からなる鋼を溶製し、鑄造し、熱延し、冷延し、引き続き高温焼鈍を施すことを特徴とする皮膜密着性の極めて優れた方向性電磁鋼板の製造方法。

(3) 冷間圧延の複数パスのパス間に $100^{\circ}\text{C} \sim 500^{\circ}\text{C}$ の温度域で1分以上保持する熱処理を少なくとも1回施し、引き続き高温焼鈍を施すことを特徴とする

(1) または (2) に記載の皮膜密着性の極めて優れた方向性電磁鋼板の製造方法。

(4) 冷間圧延を1パス目の出側以降 $100^{\circ}\text{C} \sim 500^{\circ}\text{C}$ の温度域で行い、引き続き高温焼鈍を施すことを特徴とする (1) または (2) に記載の皮膜密着性の極めて優れた方向性電磁鋼板の製造方法。

(5) 前記高温焼鈍を施した後、引き続き 700°C 以上の温度で平坦化焼鈍を行い、更に絶縁コーティングの塗布、焼き付けを行うことを特徴とする (1) ~ (4) のいずれかの項に記載の皮膜密着性の極めて優れた方向性電磁鋼板の製造方法。

(6) 熱延板に $700 \sim 1200^{\circ}\text{C}$ の温度域で30秒~30分間の焼鈍を施すことを特徴とする (1) ~ (5) のいずれかの項に記載の皮膜密着性の極めて優れた方向性電磁鋼板の製造方法。

【0012】

【発明の実施の形態】

本発明者らは、 TiC をインヒビターとした場合の二次再結晶を安定化させる方法を探索するため、まず二次再結晶過程での TiC 析出物の分布状態および結晶粒界の移動変化等を詳細に解析した。その結果、鋼中 TiC の総量は必ずしも減少せず、むしろ TiC の析出サイズが大きくなって、その個数が減り粒界移動阻止力の低下を引き起こすことを突き止めた (析出物のピン止め力はその数およびその断面積に比例するが、総量一定で析出サイズが大きくなると数はサイズの3乗で減少し断面積はサイズの2乗で増加し、その結果ピン止め力は析出サイズに反比例して減少する)。

【0013】

TiCの粗大化が容易であるという事実は、Cが極めて拡散しやすく、TiCの固溶および再析出が活性化されていることと考えることができる。また、TiCインヒビターはインヒビターとして従来から良く知られているAlNやMnS、MnSeなどに比べて、低温から粗大化が起りやすいため、二次再結晶を安定化的に制御することが困難であることが判明した。

【0014】

そこで、本発明者らは容易に粗大化してしまうTiCをインヒビターとして使用した場合であっても二次再結晶を安定化させる方策について検討した。具体的には、二次再結晶を制御する物理的因子としてインヒビターを代えられない以上、もう一つの物理的な因子である一次再結晶組織を変化させることにより二次再結晶の安定化をはかる添加元素の探索を行った。その結果、鋼中にCuを添加することにより二次再結晶を安定化でき、好ましい磁気特性が得られることを知見した。

【0015】

また、当技術をさらに発展させるため、C添加量および熱延板焼鈍に関する調査を引き続き行い、その効果を確認した。

【0016】

次に、本発明の鋼組成を限定した理由について述べる。

【0017】

Siは、4.5%を超えると脆化が激しくなり、スリット、剪断等の加工で所定の形状を得ることが困難になることから4.5%以下とした。2%を下回ると、商用周波数における使用で発生するエネルギー損失のうちの渦電流損が増大して磁気特性が劣化するので、2%以上とした。

【0018】

Tiは0.1%を下回ると、電気機器成型時の熱処理でTiC皮膜の分解が発生するので0.1%以上とした。0.4%を超えると同じ熱処理時に雰囲気と反応して鋼中に介在物を発生させるので0.4%以下とした。

【0019】

また、本発明は、通常の鋼では不純物としてしか含まれないCuを積極的に0

0.3%~0.4%添加することにある、このCu添加が及ぼす二次再結晶の安定化はCuが硫化物とはなっていないことからインヒビターとしての効果ではなく、一次再結晶組織（集合組織も含む）の改善効果によるものと考えられるが、実際の一次再結晶集合組織においてゴス方位の増加およびゴス方位のΣ9対応方位の増加が確認できている。この集合組織変化は二次再結晶する核としてのゴス方位を持つ結晶粒の増加およびそれを優先成長させやすいと考えられている対応方位の増加に対応していることから、二次再結晶の安定化に寄与するものと考えることができる。

【0020】

図1に上記の結論を導いた実験結果を示す。実験においては、Si:3.3%、Ti:0.2%、C:0.05%、Cu:0~1.6%の鋼を1250℃のスラブ加熱温度で熱延し、板厚を2.3mmとし、冷間圧延し、板厚を0.22mmとし、その後仕上焼鈍として、乾水素中で950℃まで加熱した後2時間保定し、さらに1150℃まで昇温して20時間保持した。図1に得られた試料のB8の平均値を示す。このB8の意味するところは単なる磁気特性の評価値だけでなく、製造安定性の評価値でもある。安定的に磁性が得られない場合、B8の低いサンプルが比較的多くなるので、簡便にB8の平均値を用いて製造安定性の評価も行っている。図1より、Cu添加の効果によるB8向上効果が0.03以上で現れはじめ、効果は添加量にともない上昇し0.4%程度までその効果が持続することがわかる。

【0021】

また、Ti添加量に応じて、以下の数式で表されるようにTiC当量以上の炭素量に鋼組成を調整することは一次再結晶組織の改善およびインヒビターの補強として好ましい。即ち、炭素量を $(0.251 \times [\text{Ti}] + 0.005)\%$ 以上とすることが安定的に二次再結晶を発現させる上で好ましい。また上限については二次再結晶安定化の観点からは特に規定しないが、TiC当量のC量に対する過剰C量が0.05%を超えてしまうことは二次再結晶完了後の純化焼鈍で鋼中の炭素量を0.0030%以下とすることが困難なので好ましくない。

【0022】

冷延工程においては圧延を $100^{\circ}\text{C}\sim 500^{\circ}\text{C}$ の温度域で行うこと、または冷間圧延の複数パスのパス間に $100^{\circ}\text{C}\sim 500^{\circ}\text{C}$ の温度域1分以上保持する熱処理を少なくとも1回施すことにより添加したCの効果をより顕著に引き出し、良好な二次再結晶を得ることができる。

【0023】

本発明における仕上焼鈍後、基本的にはTiCからなる極めて密着性良く強固な皮膜が形成されるが、これは完全な絶縁体ではないので、電気機器に組み込む際の実特性向上を図るために絶縁コーティングの塗布、焼き付けを行うことは有用である。

【0024】

また、得られた方向性電磁鋼板の表面に傷導入、歪み付与、溝形成および異物混入のいずれかの手段によって磁区を細分化すると鉄損が大きく低減する効果がある。TiC皮膜を有する本発明に係る方向性電磁鋼板にこのような処置を施した場合、TiC皮膜を有さない従来の材料に比べて皮膜の軟化、張力の低下が見られず極めて有利である。

【0025】

【実施例】

以下、実施例により更に詳しく本発明を説明する。

〈実施例1〉

Si: 3.5%、Ti: 0.2%、C: 0.05および0.08%、Cu: 0%および0.2%の鋼を真空溶製し、 1250°C でスラブ加熱した後2.3mm厚まで熱延し、冷延では板厚を0.23mmとし引き続き、乾水素中で 950°C まで加熱した後2時間保定し、さらに 1150°C まで昇温して20時間保持した。その後、磁気測定を行い得られたB8値の平均値を表1に示した。

【0026】

表1よりCu添加による磁気特性の向上およびC添加量の増加による磁気特性が向上していることが分かる。

【0027】

【表 1】

表 1

Cu量 (%)	C量 (%)	磁性 : B ₈ (T)	
0.01%未満	0.05	1.82	比較例
0.2	0.05	1.87	本発明
0.2	0.08	1.90	本発明

【0028】

＜実施例 2＞

実施例 1 の条件において Cu 添加量 0.2%、C 量が 0.08% のものについてパス間エージングを施して冷間圧延した場合の磁気特性を表 2 に示す。

【0029】

表 2 より冷間圧延途中の熱処理により磁気特性が向上していることが分かる。

【0030】

【表 2】

表 2

冷延途中熱処理回数	熱処理温度 (°C)	熱処理時間 (分)	磁性 : B 8 (T)	比較例
0	—	—	1. 9 0	比較例
1	2 5 0	5	1. 9 2	本発明

【 0 0 3 1 】

次に、実施例 1， 2 で得られた本発明材に絶縁コーティングを塗布し、さらに

表 3 に掲げる磁区制御方法を適用し鉄損を評価したところ、表 3 に示す特性が得られた。本発明材において磁区制御効果が明瞭に現れている。

【 0 0 3 2 】

【表 3】

表 3

磁性 : B8 (T)	磁区制御前鉄損 : w17/50 (W/kg)	磁区制御方法	磁区制御後鉄損 : w17/50 (W/kg)
1. 9 2 3	0. 8 3 5	レーザー照射	0. 7 0 1
1. 9 1 6	0. 8 5 2	溝形成	0. 7 2 2

【 0 0 3 3 】

＜実施例 3＞

実施例 1 の条件において C 量が 0. 0 5 % のものについて圧延温度を変化させて冷間圧延を施した場合の磁気特性を表 4 に示す。なお、圧延温度は 1 パス目出側以降の出側温度の平均値である。

【 0 0 3 4 】

表 4 から、温間圧延により優れた磁気特性が得られることが確認できる。

【 0 0 3 5 】

【表 4】

表 4

圧延温度 (°C)	磁性 : B 8 (T)	
3 1	1. 8 7	比較例
2 7 8	1. 9 0	本発明

【 0 0 3 6 】

＜実施例 4＞

実施例 1 の条件において、C 量が 0. 0 8 % のものについて、熱延板に 1 0 5 0 °C × 3 0 秒の熱延板焼鈍を施し、冷間圧延中に 1 5 0 °C × 5 分 × 5 回のパス毎

エージングを施した場合の磁気特性を表 5 に示す。

【0 0 3 7】

表 5 より熱延板焼鈍を施すことにより、B 8 が向上し、パス毎エージングとの複合によりさらに B 8 が向上することがわかる。

【0 0 3 8】

【表 5】

表 5

熱延板焼鈍	パス毎エージング	磁性：B 8 (T)	
なし	なし	1. 9 0	比較例
あり	なし	1. 9 2	発明例
あり	あり	1. 9 3	発明例

【0 0 3 9】

【発明の効果】

本発明により、脱炭焼鈍を省略でき製造コストが安価で、密着性のきわめて良好な皮膜をもつ磁気特性良好な方向性電磁鋼板を製造することが可能になった。

【図面の簡単な説明】

【図 1】

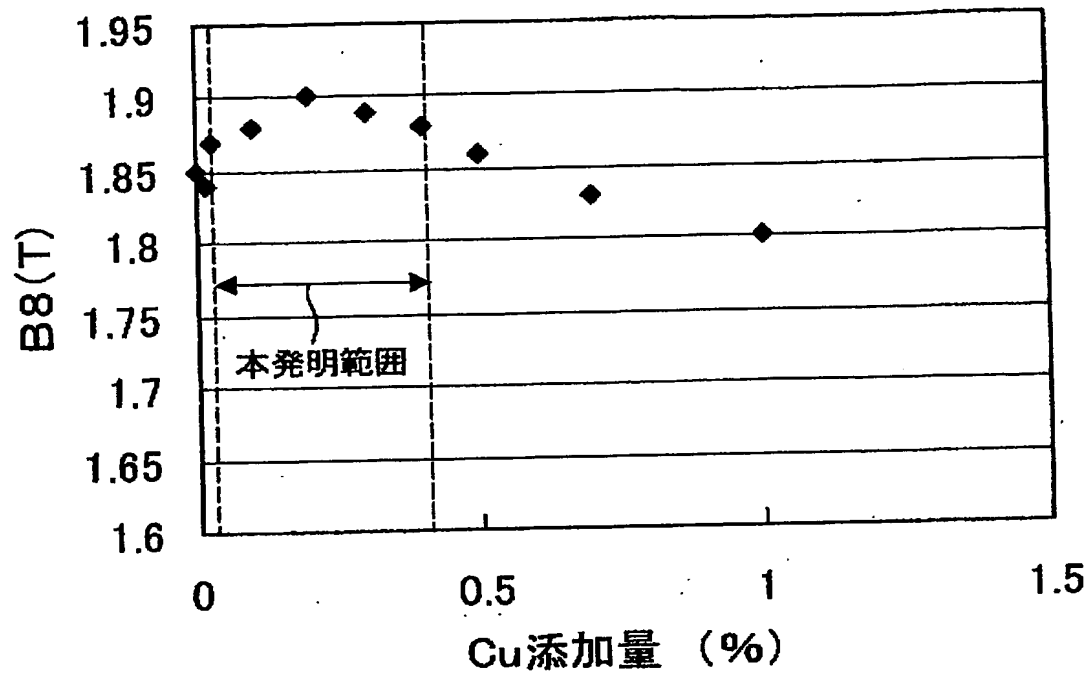
C u 添加量が及ぼす鋼板の磁束密度 B 8 への影響を示す図である。

【書類名】

図面

【図1】

図 1



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 製造コストが安価で、密着性のきわめて良好な皮膜をもつ磁気特性良好な方向性電磁鋼板の製造方法を提供する。

【解決手段】 T i C をインヒビターに用い、脱炭工程を省略し、かつ高温焼鈍時に密着性の極めて良好な T i C 皮膜を形成させ、製鋼成分において C u を添加することにより製造コストが安価で、密着性のきわめて良好な皮膜をもつ磁気特性良好な方向性電磁鋼板を製造する方法。

【選択図】 図 1

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [000006655]

1. 変更年月日	1990年 8月10日
[変更理由]	新規登録
住 所	東京都千代田区大手町2丁目6番3号
氏 名	新日本製鐵株式会社